

EP04/52522

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 25 NOV 2004

WIPO PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

Aktenzeichen: 103 50 125.8

Anmeldetag: 21. Oktober 2003

Anmelder/Inhaber: Degussa AG,
40474 Düsseldorf/DE;
Rembrandtin Lack Gesellschaft m.b.H.,
Wien/AT.

Bezeichnung: Zusammensetzung zur Erzeugung einer
Barrierschicht für Gase

IPC: C 09 D, C 09 K, C 08 K

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 22. Juli 2004
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Letang

BEST AVAILABLE COPY

Zusammensetzung zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Zusammensetzung auf Organosiloxanbasis
5 zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase. Die Erfindung betrifft auch ein
Verfahren zur Herstellung der Zusammensetzung sowie deren Verwendung.

Zur Herstellung von Verpackungsmaterialien werden als Ersatz für Metalle oder Glas
zunehmend Kunststoffe verwendet, die zu Folien oder Hohlkörpern verarbeitet
10 werden. Kunststoffe zeichnen sich gegenüber Glas und Metallen durch ihr
geringeres Gewicht und durch die geringen benötigten Materialmengen aus. Als
Beispiel für Kunststoffhohlkörper können die in großem Umfang bereits eingesetzten,
aus Polyethylenterephthalat bestehenden PET-Flaschen genannt werden. Diese
werden von der Getränkeindustrie in großem Umfang zur Abfüllung von Mineral-
15 wässern oder Limonaden eingesetzt.

Aufgrund ihres strukturellen Aufbaus weisen Verpackungsmaterialien aus Kunststoff
oder Papier bzw. Karton eine gewisse Permeabilität für Gase, Wasserdampf und
Aromen auf. Diese Permeabilität verhindert den Einsatz von
20 Kunststoffverpackungsmaterialien in Bereichen, in denen besonders hohe
Anforderungen bezüglich der Barriereigenschaften gestellt werden. In diesen
Bereichen ist es erforderlich, die Permeabilität für Gase und Wasserdampf durch
Barrierschichten herabzusetzen, die auf die Kunststoffmaterialien aufgebracht
werden.

25 Zur Erzeugung dieser Barrierschichten sind im Stand der Technik verschiedene
Beschichtungsmaterialien bekannt.

DE 196 50 286 C2 beschreibt ein anorganisch-organisches Hybridmaterial
30 (ORMOCER-Schicht) auf einem Trägermaterial mit mindestens 2 Schichten, wobei
eine Schicht aufgedampftes SiO_x (100 nm) ist, die mit ORMOCER überlackiert wird
(3 μm).

WO 01/66653 A1 beschreibt Bis-Aminotrimethoxysilan in Methanol als Lösemittel zur Herstellung von Barrierschichten auf einem Trägermaterial.

5 WO 01/66654 A1 und WO 01/66655 beschreiben Kondensationsprodukte aus Bis-Aminomethoxysilan oder anderen Aminosilanen und phenolischen Verbindungen in Methanol als Materialien zur Herstellung von Barrierschichten.

10 WO 01/66656 A2 und WO 01/66662 beschreiben Zubereitungen aus einer Mischung von Bis-Aminotrimethoxysilan und Aminoethylaminopropyltrimethoxysilan mit multifunktionellen Acrylaten und ethylenisch ungesättigten organischen Säuren in Methanol. Die Barriere-Schicht wird UV-gehärtet.

15 WO 01/66661 A1 beschreibt reaktive Silane, ethylenisch ungesättigte Säuren und Polyethylenimin in Isopropanol.

20 US 5 077 135 (EP 0 313 252 A2, EP 0 392 115 A2, EP 476 202 A1, EP 0 505 274 A2) beschreibt zur Herstellung des Beschichtungsmaterials Silane wie Dimethyldimethoxy-, Methyltrimethoxy-, Methacryloxypropyltrimethoxy-, Vinyltriethoxy- und Aminopropyltriethoxysilan, Vinylbenzylaminosilan und Mischungen dieser Silane in Methanol als Lösemittel.

25 Allen gemeinsam ist die Erzeugung einer Barrierschicht mit Sperrwirkung gegenüber Gas- und Wasserdampf auf Kunststoff-Folien (z. B. PE, PP) für Verpackungsmaterial.

Obwohl die im Stand der Technik bekannten Barrierschichten eine gewisse Sperrwirkung gegenüber Gasen und Wasserdampf aufweisen, ist es wünschenswert, die Sperrwirkung weiter zu verbessern. Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, eine Zusammensetzung anzugeben, die zu Barrierschichten mit verbesserter Sperrwirkung führt.

Diese Aufgabe wird gelöst durch eine Zusammensetzung auf Organosilanbasis, die gekennzeichnet ist durch einen Gehalt an

- (i) mindestens einem Organoalkoxysilan, dessen Organofunktionalität mindestens eine ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppe ausweist,
- (ii) mindestens einem Aminoalkylalkoxysilan,
- (iii) mindestens einem Polyol,
- (iv) gegebenenfalls einem weiteren Alkoxysilan oder Alkoxysiloxan und
- (v) gegebenenfalls mindestens einem nano- oder mikroskaligen Halbmetall- oder Metalloxid, -oxidhydroxid oder -hydroxid und/oder
- (vi) mindestens einem Cokondensat aus den Komponenten (i), (ii), (iii) und gegebenenfalls (iv) sowie gegebenenfalls (v) und/oder
- (vii) unter Hydrolysebedingungen entstehenden Reaktionsprodukten aus den Komponenten (i), (ii), (iii) und gegebenenfalls (iv) sowie gegebenenfalls (v)
- (viii) und organischem Lösemittel mit der Maßgabe, daß ein molares Verhältnis (i) : (ii) : (iii) mit (i) = 1 und (ii) = 0,5 bis 1,5 und (iii) = 0,3 bis 1,1 vorliegt.

Vorteilhaft beträgt das molare Verhältnis (i) : (ii) 3:2 bis 2 : 3.

Vorteilhaft beträgt das molare Verhältnis (i) : (ii) : (iii)

1 : 1 : 0,5 oder			
1 : 1 : 0,6 oder	1 : 1 : 0,7 oder	1 : 1 : 0,8 oder	1 : 1 : 0,9 oder
1 : 1 : 1 oder	1 : 0,9 : 1 oder	1 : 0,9 : 0,9 oder	1 : 0,9 : 0,8 oder
1 : 0,9 : 0,7 oder	1 : 0,9 : 0,6 oder	1 : 0,9 : 0,5 oder	1 : 1,1 : 1 oder
1 : 1,1 : 0,9 oder	1 : 1,1 : 0,8 oder	1 : 1,1 : 0,7 oder	1 : 1,1 : 0,6 oder
1 : 1,1 : 0,5 oder	1 : 1,2 : 1 oder	1 : 1,2 : 0,9 oder	1 : 1,2 : 0,8 oder
1 : 1,2 : 0,7 oder	1 : 1,2 : 0,6 oder	1 : 1,2 : 0,5.	

Vorteilhaft ist die Komponente (i) ausgewählt aus der Reihe Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriethoxysilan, 3-Methacryloxypropyltrimethoxysilan, 3-Methacryloxypropyltriethoxysilan, 3-Methacryloxypropylmethyldimethoxysilan, Vinylmethyldimethoxysilan, Vinylmethyldiethoxysilan, 3-Methacryloxypropylmethyldiethoxysilan, 3-Acryloxypropyltrimethoxysilan, 3-Acryloxypropyltriethoxysilan, 3-Acryloxypropylmethyldimethoxysilan, 3-Acryloxypropylmethyldiethoxysilan.

Die Komponente (ii) wird vorteilhaft ausgewählt aus der Reihe 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Aminopropyltriethoxysilan, N-Phenyl-3-

aminopropyltrimethoxysilan, N-Phenyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-Methyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-Methyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyltriethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropyltriethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltriethoxysilan, 3-Aminopropylmethyldimethoxysilan, 3-Aminopropylmethyldiethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropylmethyldiethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropylmethyldiethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropylmethyldiethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropylmethyldiethoxysilan.

15

Die Komponente (iii) ist vorteilhaft ein aliphatisches oder aromatisches Polyol. Als solche eignen sich Glukose, Xylitol, Mannitol, Sorbitol, Resorcin, Pyrogallol, Hydrochinon, o-Hydroxybenzoesäure (Salicylsäure) oder Glycerol.

20

Die Komponente (iv) wird vorteilhaft ausgewählt aus der Reihe Tetraethoxysilan, oligomeres Tetraalkoxysilan, Propyltrimethoxysilan, Propyltriethoxysilan, Octyltrimethoxysilan, Octyltriethoxysilan, alkoholische und/oder wäßrige

25

Zusammensetzungen oligomerer Cokondensate aus Aminoalkylalkoxysilanen und Fluoralkylalkoxysilanen, sowie oligomere Kondensate oder Cokondensate aus Alkylalkoxysilanen und/oder Vinylalkoxysilanen. Die Kondensate oder Cokondensate können beispielsweise aus Propyltrimethoxysilan, Propyltriethoxysilan, Octyltrimethoxysilan, Octyltriethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan oder Vinyltriethoxysilan hergestellt sein.

30

Die Komponente (v) wird vorteilhaft ausgewählt aus der Reihe Kieselsäure, Silikate, Aluminiumoxide, Aluminiumoxidhydroxide und Aluminiumhydroxid. Als Kieselsäure kann gefällte oder pyrogene Kieselsäure eingesetzt werden. Beispiele für Silikate sind Alumosilikate, Aluminiumsilikate, Schichtsilikate und dergleichen. Als Aluminiumoxidhydroxid wird vorzugsweise Böhmit eingesetzt.

Vorteilhaft ist das organische Lösemittel ein geradkettiger oder verzweigter, aliphatischer oder cycloaliphatischer oder araliphatischer oder aromatischer Alkohol.

- 5 Die Zusammensetzung enthält vorteilhaft einen Fotoinitiator, vorzugsweise in einer Menge von 1 bis 4 Gew.-% bezogen auf das Gesamtgewicht der Zusammensetzung, wenn sie durch UV-Strahlen gehärtet werden soll.

Vorteilhaft beträgt der Festkörpergehalt der Zusammensetzung 10 - 60 Gew.-%.

10

Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung einer Zusammensetzung auf Organosilanbasis zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase. Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß man

- 15 a) die Komponenten (i), (ii), (iii), gegebenenfalls (iv), gegebenenfalls Lösemittel und Wasser zusammengibt, mischt und reagieren lässt

oder

- b) die Komponenten (i), (ii) und gegebenenfalls (iv) vorlegt, das Gemisch erwärmt, Komponente (iii), gegebenenfalls gelöst in einem Lösemittel, und Wasser —
20 zugibt und unter Rückfluss reagieren lässt

oder

- c) die Komponenten (i), (ii), gegebenenfalls (iv), gegebenenfalls Lösemittel und gegebenenfalls Komponente (v) unter guter Durchmischung vorlegt, das Gemisch erwärmt, Komponente (iii), gegebenenfalls gelöst in einem Lösemittel, und Wasser zugibt und unter Rückfluss reagieren lässt
25

oder

- d) hochdisperse Kieselsäure in Vinylsilan dispergiert, die übrigen Komponenten zugibt und die Mischung bei Raumtemperatur oder unter Rückfluß umsetzt

- 30 wobei ein molares Verhältnis (i) : (ii) : (iii) mit (i) = 1 und (ii) = 0,5 bis 1,5 und (iii) = 0,3 bis 1,1 vorliegt.

Als Lösemittel werden vorzugsweise Alkohol, Wasser oder eine wäßrige Alkohollösung eingesetzt.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren ist es vorteilhaft, daß man dem nach der Umsetzung erhaltenen Produktgemisch Aktivkohle zusetzt, filtriert und gegebenenfalls aus dem Filtrat Lösemittelanteile entfernt.

5

Vorteilhaft setzt man pro Mol Silicium der Komponenten (i), (ii) sowie (iv) 0,5 bis 1,8 Mol Wasser, vorzugsweise 0,85 bis 1,8 Mol Wasser, insbesondere 1,3 bis 1,4 Mol Wasser ein.

10

Vorteilhaft setzt man die Komponente (v) in einer Menge von 0,01 bis 40 Gew.-%, vorzugsweise von 1,0 bis 30 Gew.-%, besonders bevorzugt von 5,0 bis 25 Gew.-%, insbesondere pyrogen hergestellte Kieselsäure in Verbindung mit Glukose, Xylitol, Mannitol, Sorbitol, Resorcin, Pyrogallol, Hydrochinon, Salicylsäure oder Glycerol, bezogen auf die Summe der Komponenten (i) bis (iv), ein.

15

Die Umsetzung der Komponenten wird vorzugsweise bei einer Temperatur im Bereich von 10 bis 90 °C, vorzugsweise von 20 bis 80 °C, über einen Zeitraum von 1 bis 36 Stunden, vorzugsweise 2 bis 24 Stunden, durchgeführt.

20

Die Erfindung betrifft auch die Verwendung der zuvor beschriebenen Zusammensetzungen zur Erzeugung einer strahlengehärteten Barrierschicht für Gase, auf einem Verpackungsmaterial aus Kunststoff, Papier, Pappe oder Karton.

25

Die Erfindung betrifft weiterhin die Verwendung der erfindungsgemäßen Zusammensetzung zur Erzeugung einer strahlengehärteten Barrierschicht für Gase, wobei man zur weiteren Verbesserung der Barriereigenschaften auf die Barrierschicht mindestens eine weitere, thermisch, radikalisch oder fotochemisch härtbare Beschichtung aufbringt.

30

Als weitere Beschichtung, nachfolgend auch Überzugsmittel oder Deckschicht genannt, wird vorteilhaft ein Lack, insbesondere auf Epoxidharzbasis, aufgebracht, der neben einem Fotoinitiator als weitere Komponenten mindestens ein Umsetzungsprodukt aus feinpulvrigem Silikat, beispielsweise einem natürlichen oder modifizierten Ton bzw. Schichtsilikat, insbesondere Glimmer, ein organofunktionelles

Silan, insbesondere Methacryloxypropyltrimethoxysilan, und Wasser enthält. Insbesondere ist als weitere Beschichtung ein System geeignet, wie es aus der deutschen Parallelanmeldung mit dem Titel „Überzugsmittel zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase“ hervorgeht.

5

Die Erfindung betrifft weiterhin die Verwendung nach den Ansprüchen 15 bis 20 sowie Verpackungsmaterialien nach Ansprüchen 21 bis 24.

Als plättchenförmige Metallpigmente können in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung und/oder im Überzugsmittel beispielsweise die aus der Lacktechnik bekannten Metalleffektpigmente, beispielsweise Aluminiumbronzen, verwendet werden. Hierdurch erhalten die mit dem Überzugsmittel beschichteten Gegenstände ein dekoratives Aussehen.

15 Ein weiteres plättchenförmiges Material, das weder ein Schichtsilikat noch ein Metallpigment ist, aber ebenfalls in dem erfindungsgemäßen Überzugsmittel verwendet werden kann, ist Bornitrid in Plättchenform.

Die plättchenförmigen Partikel sind vorteilhaft in einer Menge von 0,5 - 50 Gew.-%, vorzugsweise 20 - 30 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Überzugsmittels in diesem enthalten.

Vorteilhaft enthält das Überzugsmittel für die Deckschicht als weiteren Bestandteil funktionelle Silane. Sie dienen als Haftvermittler zur Verbesserung der Haftung zwischen Barrierschicht und Untergrund. Ferner dienen sie zur Oberflächenmodifikation der Füllstoffpartikel und auch der Barrierschicht. Als funktionelle Silane sind beispielsweise Meth- oder Ethoxysilane, Vinyl-, Epoxy- oder aminofunktionelle Silane geeignet. Beispielfhaft seien genannt 3-Aminopropyltriethoxysilan, 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 2-Aminoethyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, Methyltriethoxysilan, Propyltrimethoxysilan, Propyltriethoxysilan, Isobutyltrimethoxysilan, Isobutyltriethoxysilan, 3-Glycidyloxypropyltrimethoxysilan, 3-Glycidyloxypropyltriethoxysilan, 3-Methacryloxypropyltrimethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan, 3-Mercaptopropyltrimethoxysilan, Bis(3-triethoxysilylpropyl)amin, N-(n-butyl)-3-

aminopropyltrimethoxysilan, Tetraethylorthosilicat, Ethylpolysilicat,
Vinyltriethoxysilan, Octyltriethoxysilan und Hexadecyltrimethoxysilan.

Vorteilhaft enthält das Überzugsmittel für die Deckschicht als weiteren Bestandteil
5 anorganische Nanopartikel. Hierunter werden anorganische Füllstoffe verstanden,
die in feinteiliger Form vorliegen, wobei die Partikelgröße im Nanometerbereich liegt.
Durch diese Nanopartikel werden nicht nur die Fließeigenschaften des
Überzugsmittels verbessert, sondern sie tragen auch zur Erhöhung des
Permeationswiderstandes für Gase bei. Weiterhin erhöhen sie die mechanische
10 Stabilität der unter Verwendung des erfindungsgemäßen Überzugsmittels
hergestellten Barrierschichten. Ein geeignetes Material zur Erzielung der
vorgenannten Eigenschaften ist beispielsweise hochdisperse Kieselsäure. Sie erhöht
die Viskosität des Überzugsmittels und beeinflusst dadurch vorteilhaft die Stabilität
desselben und die Verarbeitungseigenschaften. Außerdem wird die Festigkeit der
15 Barrierebeschichtung verbessert und ihre Kratz- und Abriebbeständigkeit erhöht. Die
im Handel erhältliche hochdisperse Kieselsäure ist in der Regel stark agglomeriert.
Vor oder während der Einarbeitung in die erfindungsgemäßen Überzugsmittel sollte
dieses Material so gründlich wie möglich deagglomeriert werden.

20 Vorteilhaft enthält das Überzugsmittel als weitere Bestandteile Pigmente und/oder
Farbstoffe zur Einstellung des visuellen Aspektes und/oder zur Absorption von
ultravioletter, sichtbarer und infraroter Strahlung. Pigmente dienen der Farbgebung
und ermöglichen die Einstellung von Glanz und Opazität der Barrierschichten. UV-
und IR-Absorber sowie Lichtschutzadditive ergeben einen zusätzlichen Schutz des
25 Füllgutes.

Zur Einstellung der Verarbeitungseigenschaften des Überzugsmittels für die
Deckschicht und zur Verbesserung der Substratbenetzung kann das Überzugsmittel
vorteilhaft Modifikatoren enthalten, z. B. hydroxilierte Polybutadiene, Fettalkohole,
30 Polypropylenglykole, reaktive Monomere bzw. Oligomere. Zur Verbesserung der
Substratbenetzung und der Wasserdampfbarriereigenschaften können
beispielsweise Polybutadien oder 1-Octanol eingesetzt werden.

Zur Verbesserung der Verschleißfestigkeit der resultierenden Barrierschicht können Füllstoffe wie z. B. pyrogen hergestellte Kieselsäure oder Korund verwendet werden.

Die Herstellung des Überzugsmittels für die Deckschicht erfolgt nach den bekannten Regeln der Technik beispielsweise durch einfaches Mischen der Komponenten und Homogenisieren der Materialien mittels eines Dissolvers. Beim Einsatz von Pigmenten, Farbstoffen, Aerosilen usw. kann die Herstellung einer Stammpaste mittels einer Perlmühle zweckmäßig sein. Die Empfehlung der Rohstoffhersteller sind hierbei zu beachten.

Die Erfindung betrifft auch die Verwendung eines oben beschriebenen Überzugsmittels für die Deckschicht zur Beschichtung von Verpackungsmaterialien aus Kunststoff, Papier, Karton oder Pappe zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase. Bei den zu beschichtenden Substraten handelt es sich um solche, die in gewissem Umfang permeable für gasförmig transportierbare Stoffe wie Gase, Dämpfe, Aromen etc. sind oder gegenüber den genannten gasförmig transportierbaren Stoffen geschützt werden sollen. Die entstehenden Schutzüberzüge bilden in diesem Falle also einen Korrosionsschutz im weitesten Sinne. Geeignete Kunststoffsubstrate sind unter anderem Polyethylen, Polypropylen, biaxial orientiertes Polypropylen, Polyethylenterephthalat, Polystyrol, Polycarbonat. Besondere Bedeutung haben die in zunehmendem Maße zur Abfüllung von Getränken verwendeten Kunststoffflaschen aus Polyethylenterephthalat. Weiterhin sind geeignete Substrate Papier, Pappe und Karton. Mit den erfindungsgemäßen Überzugsmitteln können aber auch Metalle wie Eisen, Aluminium, Kupfer, Zinn, Zink und Messing sowie mineralische Untergründe beschichtet werden.

Für die Aufbringung der erfindungsgemäßen Überzugsmittel müssen die Substrate trocken und fettfrei sein. Eventuell ist ein vorheriges Spülen mit Alkohol beispielsweise Isopropanol erforderlich. Eine Coronavorbehandlung kann die Haftung zum Substrat im Falle von Kunststoffen verbessern.

Die erfindungsgemäßen Überzugsmittel für die Deckschicht sind flüssige Materialien, die grundsätzlich durch alle verfügbaren Applikationsmethoden verarbeitbar sind wie Spritzen, Fluten, Tauchen, Walzen, Rakeln. Die Härtung des Überzugsmittels auf

dem Substrat erfolgt je nach Bindemitteltyp durch UV-Strahlung oder Elektronenstrahlen.

Die gehärteten Schichten, die erfindungsgemäß hergestellt worden sind, stellen
5 wirksame Barrieren gegenüber gasförmig transportierbaren Stoffen dar. Diese Stoffe
können Gase im engeren Sinne wie Sauerstoff, Stickstoff, Kohlendioxid,
Schwefeldioxid usw. oder Gase im weiteren Sinne wie Dämpfe von Wasser,
Alkoholen, Aromastoffen, Aminen, Aldehyden, Terpenen usw. sein. Aufgrund der
guten Barriereigenschaften ergeben sich zahlreiche Anwendungsmöglichkeiten. Bei
10 den mit einer erfindungsgemäßen Barrierschicht ausgestatteten Produkten kann es
sich um flächige oder dreidimensionale Produkte aus Kunststoff oder
Papierwerkstoffen handeln, beispielsweise um Folien, Papiere, Pappen, Kartons,
Kombinationen dieser Werkstoffe und Hohlkörper beispielsweise Flaschen zum
Verpacken von Füllgütern, die empfindlich gegenüber gasförmigen Stoffen sind oder
15 solche Stoffe abgeben, wie z. B. Lebensmittel, Genußmitteln, Getränke,
Medikamente oder Chemikalien. Die Barrierschicht dient zum Schutz vor Verderb
durch chemische oder physikalische Einflüsse und zum Schutz vor der Aufnahme
von Geschmacks- und Geruchsstoffen.

20 Im folgenden wird die Erfindung anhand von Beispielen näher erläutert.

Beispiel 1

25 **Gemisch aus Methacryloxypropyltrimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-
aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Sorbitol (Molares Verhältnis 1 :
0,95 : 0,61)**

In einem 2,0 l Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer,
und Tropftrichter, werden 126 g Methacryloxypropyltrimethoxysilan und 126 g N-[N'-
(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan vorgelegt und auf 65 °C
30 erwärmt. Mittels Tropftrichter wird eine Mischung von 412,5 g Methanol und 80,1 g
einer 70 %igen wässrigen Lösung von Sorbitol innerhalb von 50-60 min unter Rühren
zudosiert. Man erhält eine klare, farblose Flüssigkeit. Die Reaktionsmischung wird

1,5 Stunden am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

Das Siloxan-Sorbitol-Gemisch ist eine klare, gelblich gefärbte lagerstabile Flüssigkeit mit einem Feststoffgehalt von ca. 33 % nach DIN / EN ISO 3251.

Zur Prüfung der Barrierewirkung werden 90 ml des Siloxan-Sorbitol-Gemischs nach Verdünnung mit Methanol auf einen Feststoffanteil von 15 % mit 300 mg Lucirin-TPO-L (BASF) versetzt. In diese Flüssigkeit wird 65 µm dicke PE-Folie getaucht und an der Luft getrocknet. Danach wird die Folie bei minimaler Bandgeschwindigkeit und max. Lampenleistung durch eine UV-Laboranlage unter Inertisierung mit Stickstoff (Sauerstoff < 50 ppm) gefahren. Es wurde eine gut haftende, transparente Schicht mit einer Schichtdicke von ca. 3 µm erhalten. Die Sauerstoffpermeation lag bei 6 ml/m² d bar (0 % r. F.).

15

Beispiel 2

Gemisch aus Vinyltrimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Sorbitol (Molares Verhältnis 1 : 0,95 : 0,61)

In einem 2,0 l Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer, und Tropftrichter, werden 81,5 g Vinyltrimethoxysilan und 137,9 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan vorgelegt und auf 65 °C erwärmt. Mittels Tropftrichter wird eine Mischung von 329,1 g Methanol und 87,3 g einer 70 %igen wässrigen Lösung von Sorbitol innerhalb von 30-40 min unter Rühren zudosiert. Man erhält eine trübe, leicht gelbe Flüssigkeit. Die Reaktionsmischung wird 1,5 Stunden am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt, mit 0,1 % Aktivkohle versetzt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

Das Siloxan-Sorbitol-Gemisch ist nach der Filtration eine klare, gelblich gefärbte lagerstabile Flüssigkeit mit einer Viskosität von 9,5 mPa.s und einem Feststoffgehalt von ca. 33,5 % nach DIN / EN ISO 3251.

30

Die Barrierewirkung wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Die Sauerstoffpermeation lag bei $2 \text{ ml/m}^2 \text{ d bar}$ (0 % r. F.).

Beispiel 3

- 5 **Gemisch aus mit Aerosil 380 hoch gefülltem Vinyltrimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Sorbitol**

In einem 2,0 l Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer, und Tropftrichter, werden 66,7 g eines mit 25 Gew.-% Aerosil 380 gefüllten Vinyltrimethoxysilan^{x)} vorgelegt und auf 70 °C erwärmt. Bei dieser Temperatur wird
10 50 min gerührt und wieder auf Raumtemperatur abgekühlt. Danach werden 47,7 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan zugefügt. Die entstandene leicht gelbe, sehr leicht trübe Flüssigkeit wird auf 65 °C erwärmt. Danach wird mittels Tropftrichter eine Mischung von 203,5 g Methanol und 47,7 g
15 einer 70 %igen wässrigen Lösung von Sorbitol innerhalb von 40 min unter Rühren zudosiert. Man erhält eine weiße Flüssigkeit. Die Reaktionsmischung wird 8 Stunden am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

- 20 Das Siloxan-Sorbitol-Gemisch ist nach der Filtration eine leicht trübe, gelblich gefärbte lagerstabile Flüssigkeit mit einem Feststoffgehalt von ca. 35 % nach DIN / EN ISO 3251.

Die Barrierewirkung wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Die PE-Folie
25 wurde sehr gut benetzt. Der transparente Film ergab eine Sauerstoffpermeation von $1,4 \text{ ml/m}^2 \text{ d bar}$ (0 % r. F.).

Anmerkung:

- x): Die Herstellung des mit Aerosil 380 gefüllten Vinyltrimethoxysilans ist in der
30 deutschen Patentanmeldung „Hochgefüllte Silan-Zubereitung“, Anmeldenummer 103 30 020.1, unter Beispiel 2 erläutert.

Beispiel 4

Gemisch aus Vinyltriethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Sorbitol (Molares Verhältnis 1 : 0,95 : 0,35)

5 In einem 250 ml Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer und Tropftrichter, werden 28,5 g Vinyltriethoxysilan und 37,8 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan vorgelegt und auf 70 - 75 °C erwärmt. Danach wird mittels Tropftrichter eine Mischung von 99,5 g Ethanol, 12,4 g einer 70 %igen wässrigen Lösung von Sorbitol und 11,7 g Wasser innerhalb
10 von 15 - 20 min unter Rühren zudosiert. Die entstandene Flüssigkeit ist klar und hellgelb. Die Reaktionsmischung wird 1 Stunde am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

Das Siloxan-Sorbitol-Gemisch ist nach der Filtration eine klare, gelblich gefärbte,
15 lagerstabile Flüssigkeit mit einem Feststoffgehalt von ca. 26 % nach DIN / EN ISO 3251.

Die Barrierewirkung wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Der transparente Film ergab bei einer Schichtdicke von 9,6 µm eine
20 Sauerstoffpermeation von 1 ml/m² d bar (0 % r. F.) und 67,2 ml/m² d bar (50 % r. F.).

Beispiel 5

Gemisch aus Vinyltriethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Resorcin (Molares Verhältnis 1 : 1 : 0,5)

25 In einem 250 ml Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer und Tropftrichter, werden 8,3 g Resorcin in 100,5 g Ethanol gelöst und nacheinander 39,8 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und 28,5 g Vinyltriethoxysilan zugegeben. Das Reaktionsgemisch
30 wird auf 75 – 80 °C erwärmt. Danach werden 7,3 g Wasser innerhalb von 5 - 10 min zugetropft. Die entstandene Flüssigkeit ist zitronengelb und klar. Das Gemisch wird 1 Stunde am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

Das Siloxan-Resorcin-Gemisch ist nach der Filtration eine klare, orange, lagerstabile Flüssigkeit mit einem Feststoffgehalt von ca. 27 % nach DIN / EN ISO 3251.

- 5 Die Barrierewirkung des Siloxan-Resorcin-Gemischs wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Der transparente Film ergab bei einer Schichtdicke von 9,0 µm eine Sauerstoffpermeation von 6,7 ml/m² d bar (0 % r. F.) und 1 ml/m² d bar (50 % r. F.).

10 **Beispiel 6**

Gemisch aus Vinyltriethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Resorcin (Molares Verhältnis 1 : 1 : 1)

- In einem 250 ml Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer und Tropftrichter, werden 16,5 g Resorcin in 100,5 g Ethanol gelöst und nacheinander 39,8 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und 28,5 g Vinyltriethoxysilan zugegeben. Das Reaktionsgemisch wird auf 75 – 80 °C erwärmt. Danach werden 7,3 g Wasser innerhalb von 5 - 10 min zugetropft. Die entstandene Flüssigkeit ist zitronengelb und klar. Das Gemisch wird 1,5 Stunden am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

Das Siloxan-Resorcin-Gemisch ist nach der Filtration eine klare, orange, lagerstabile Flüssigkeit mit einem Feststoffgehalt von ca. 30 % nach DIN / EN ISO 3251.

25

Die Barrierewirkung des Siloxan-Resorcin-Gemischs wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Der transparente Film ergab bei einer Schichtdicke von 14,7 µm eine Sauerstoffpermeation von 1,1 ml/m² d bar (0 % r. F.) und 4,5 ml/m² d bar (50 % r. F.).

30

Vergleichsbeispiel 1

Gemisch aus Methacryloxypropyltrimethoxysilan und N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan (Molares Verhältnis 1 : 0,95)

- 5 In einem 2,0 l Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer, und Tropftrichter, werden 114,4 g Methacryloxypropyltrimethoxysilan und 114,4 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan vorgelegt und auf 65 °C erwärmt. Mittels Tropftrichter wird eine Mischung von 503,4 g Methanol und 22,0 g Wasser innerhalb von 20 min unter Rühren zudosiert. Man erhält eine klare,
10 farblose Flüssigkeit. Die Reaktionsmischung wird 1,5 Stunden am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

- 15 Das Siloxan-Gemisch ist eine klare, gelblich gefärbte lagerstabile Flüssigkeit mit einer Viskosität von 3,2 mPa.s und einem Feststoffgehalt von ca. 23 % nach DIN / EN ISO 3251.

Die Barrierewirkung wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Der transparente Film ergab eine Sauerstoffpermeation von 625 ml/m² d bar (0 % r. F.).

20 Vergleichsbeispiel 2

Gemisch aus Vinyltriethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und Resorcin (Molares Verhältnis 2 : 0,5 : 0,5)

- 25 In einem 250 ml Mehrhalskolben, versehen mit Rührer, Rückflußkühler, Thermometer und Tropftrichter, werden 8,3 g Resorcin in 115,4 g Ethanol gelöst und nacheinander 19,9 g N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan und 57,0 g Vinyltriethoxysilan zugegeben. Das Reaktionsgemisch wird auf 75 – 80 °C erwärmt. Danach werden 9,2 g Wasser innerhalb von 5 - 10 min zugetropft. Die entstandene Flüssigkeit ist zitronengelb und klar. Das Gemisch wird
30 1,5 Stunden am Rückfluß gekocht. Danach wird das Produkt abgekühlt und über ein Glasfaserfilter filtriert.

Das Siloxan-Resorcin-Gemisch ist nach der Filtration eine klare, orange, lagerstabile Flüssigkeit mit einem Feststoffgehalt von ca. 21 % nach DIN / EN ISO 3251.

Die Barrierewirkung des Siloxan-Resorcin-Gemischs wurde, wie unter Beispiel 1 angegeben, geprüft. Der transparente Film ergab bei einer Schichtdicke von 6,2 µm eine Sauerstoffpermeation von 750 ml/m² d bar (0 % r. F.) und 420 ml/m² d bar (50 % r. F.).

Beispiel für die Herstellung des Decklackes

10

In einem 250 ml Edelstahldispersiergefäß werden 120,0 g 3,4-Epoxy-cyclohexylmethyl-3,4-epoxycyclohexancarboxylat (Handelsname UVACURE 1500; UCB Chemie GmbH) vorgelegt und unter Rühren (Dispermat) 40 g Schichtsilikat (Handelsname MICA M; Merck KGaA) eingearbeitet und bei ca. 6000 UpM ca. 10 Minuten dispergiert. Danach erfolgt unter leichtem Rühren die Zugabe von 4,5 g Bis(4-alkylaryl)-iodoniumhexafluoroantimonat (Handelsname UV 9390 c; GE Bayer Silicones GmbH & Co KG).

15

Anwendungsbeispiel für Folienkaschierung

20

Verbundaufbau: PET / Decklack / Silangemisch / Decklack / PE

Als Silangemisch wird ein Produkt gemäß Beispiel 4 verwendet. Der Auftrag Decklack / Silangemisch / Decklack führt zu einem Auftragsgewicht von ca. 18 bis 20 g/m². Die Sauerstoffpermeation lag bei 5,6 ml/m² d bar (85 % r. F.).

25

Verbundaufbau: OPP / Decklack / Silangemisch / Decklack / PE

Silangemisch gemäß Beispiel 4 und Decklack führen im Verbundaufbau bei einem Auftragsgewicht von ca. 18 bis 20 g/m² zu einer Sauerstoffpermeation von 4,7 ml/m² d bar bei 85 % r. F.

30

Patentansprüche:

1. Zusammensetzung auf Organosilanbasis zur Erzeugung einer Barrierschicht
für Gase, gekennzeichnet durch einen Gehalt an

- (i) mindestens einem Organoalkoxysilan, dessen Organofunktionalität mindestens eine ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppe ausweist,
- (ii) mindestens einem Aminoalkylalkoxysilan,
- (iii) mindestens einem Polyol,
- (iv) gegebenenfalls einem weiteren Alkoxysilan oder Alkoxysiloxan und
- (v) gegebenenfalls mindestens einem nano- oder mikroskaligen Halbmetall- oder Metalloxid, -oxidhydroxid oder -hydroxid und/oder
- (vi) mindestens einem Cokondensat aus den Komponenten (i), (ii), (iii) und gegebenenfalls (iv) sowie gegebenenfalls (v) und/oder
- (vii) unter Hydrolysebedingungen entstehenden Reaktionsprodukten aus den Komponenten (i), (ii), (iii) und gegebenenfalls (iv) sowie gegebenenfalls (v)
- (viii) und organischem Lösemittel mit der Maßgabe, daß ein molares Verhältnis (i) : (ii) : (iii) mit (i) = 1 und (ii) = 0,5 bis 1,5 und (iii) = 0,3 bis 1,1 vorliegt.

2. Zusammensetzung nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch eine Komponente (i), ausgewählt aus der Reihe Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriethoxysilan, 3-Methacryloxypropyltrimethoxysilan, 3-Methacryloxypropyltriethoxysilan, 3-Methacryloxypropylmethyldimethoxysilan, Vinylmethyldimethoxysilan, Vinylmethyldiethoxysilan, 3-Methacryloxypropylmethyldiethoxysilan, 3-Acryloxypropyltrimethoxysilan, 3-Acryloxypropyltriethoxysilan, 3-Acryloxypropylmethyldimethoxysilan, 3-Acryloxypropylmethyldiethoxysilan.

3. Zusammensetzung nach Anspruch 1 oder 2, gekennzeichnet durch eine Komponente (ii), ausgewählt aus der Reihe 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Aminopropyltriethoxysilan, N-Phenyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-Phenyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-Methyl-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-Methyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-

(2-Aminoethyl)-3-aminopropyltriethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropyltrimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltrimethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropyltriethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropyltriethoxysilan, 3-Aminopropylmethyldimethoxysilan, 3-Aminopropylmethyldiethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropylmethyldiethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropylmethyldiethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropylmethyldimethoxysilan, N,N-Di(2-aminoethyl)-3-aminopropylmethyldiethoxysilan, N-[N'-(2-aminoethyl)-2-aminoethyl]-3-aminopropylmethyldiethoxysilan.

4. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente (iii) ein aliphatisches oder aromatisches Polyol ist.

5. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, gekennzeichnet durch Glukose, Xylitol, Mannitol, Sorbitol, Resorcin, Pyrogallol, Hydrochinon, Salicylsäure oder Glycerol als Komponente (iii).

6. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, gekennzeichnet durch eine Komponente (iv), ausgewählt aus der Reihe Tetraethoxysilan, oligomeres Tetraalkoxysilan, Propyltrimethoxysilan, Propyltriethoxysilan, Octyltrimethoxysilan, Octyltriethoxysilan, alkoholische und/oder wäßrige Zusammensetzungen oligomerer Cokondensate aus Aminoalkylalkoxysilanen und Fluoralkylalkoxysilanen, sowie oligomere Kondensate oder Cokondensate aus Alkylalkoxysilanen und/oder Vinylalkoxysilanen.

7. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, gekennzeichnet durch eine Komponente (v), ausgewählt aus der Reihe Kieselsäure (gefällte oder pyrogene), Silikate, Aluminiumoxide, Aluminiumoxidhydroxide, Aluminiumhydroxid.

8. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß das organische Lösemittel ein geradkettiger oder verzweigter, aliphatischer oder cycloaliphatischer oder araliphatischer oder aromatischer Alkohol ist.

5

9. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, gekennzeichnet durch einen Gehalt an Fotoinitiator.

10. Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, gekennzeichnet durch einen Festkörpergehalt von 10 - 60 Gew.-%.

10

11. Verfahren zur Herstellung einer Zusammensetzung auf Organosilanbasis zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet,

15

dass man

a) die Komponenten (i), (ii), (iii), gegebenenfalls (iv), gegebenenfalls Lösemittel und Wasser zusammengibt, mischt und bei Raumtemperatur reagieren lässt

oder

b) die Komponenten (i), (ii) und gegebenenfalls (iv) vorlegt, das Gemisch erwärmt, Komponente (iii), gegebenenfalls gelöst in einem Lösemittel, und Wasser zugibt und unter Rückfluss reagieren lässt

20

oder

c) die Komponenten (i), (ii), gegebenenfalls (iv), gegebenenfalls Lösemittel und gegebenenfalls Komponente (v) unter guter Durchmischung vorlegt, das Gemisch erwärmt, Komponente (iii), gegebenenfalls gelöst in einem Lösemittel, und Wasser zugibt und unter Rückfluss reagieren lässt

25

oder

d) hochdisperse Kieselsäure in Vinylsilan dispergiert, die übrigen Komponenten zugibt und die Mischung bei Raumtemperatur oder unter Rückfluß umsetzt

30

wobei ein molares Verhältnis (i) : (ii) : (iii) mit (i) = 1 und (ii) = 0,5 bis 1,5 und (iii) = 0,3 bis 1,1 vorliegt.

12. Verfahren nach Anspruch 11,
dadurch gekennzeichnet,
dass man pro Mol Silicium der Komponenten (i), (ii) sowie (iv) 0,5 bis 1,8 Mol
Wasser einsetzt.
13. Verfahren nach Anspruch 11 oder 12,
dadurch gekennzeichnet,
dass man die Komponente (v) in einer Menge von 0,01 bis 40 Gew.-%,
bezogen auf die Summe der Komponenten (i) bis (iv), einsetzt.
14. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 13,
dadurch gekennzeichnet,
dass man die Umsetzung bei einer Temperatur im Bereich von 10 bis 90 °C
und über einen Zeitraum von 1 bis 36 Stunden durchführt.
15. Verwendung einer Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 10 oder
einer gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14 erhältlichen Zusammensetzung
zur Erzeugung einer strahlengehärteten Barrierschicht für Gase auf einem
Verpackungsmaterial aus Kunststoff, Papier, Pappe oder Karton.
16. Verwendung einer Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 10 oder
einer gemäß einem der Ansprüche 11 bis 15 erhältlichen Zusammensetzung
zur Erzeugung einer strahlengehärteten Barrierschicht für Gase, wobei man
auf die Barrierschicht mindestens eine weitere thermisch, radikalisch oder
strahlenhärtbare Beschichtung als Deckschicht aufbringt.
17. Verwendung nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß zur Erzeugung
der Deckschicht ein Überzugsmittel aufgebracht wird, das ein durch UV-
Strahlen oder Elektronenstrahlen härtpbares Bindemittel und anorganische
plättchenförmige Partikel enthält, wobei entweder das Deckschichtmaterial auf
die gehärtete erste Barrierschicht aufgebracht wird und anschließend gehärtet
wird oder die erste Barrierschicht und die Deckschicht naß-in-naß aufgebracht
werden und gemeinsam gehärtet werden.

18. Verwendung nach Anspruch 16 oder 17, dadurch gekennzeichnet, daß das Bindemittel des Überzugsmittels für die Deckschicht ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Acrylaten, Urethanacrylaten, Epoxy-Acrylaten, cycloaliphatischen Epoxiden und Polyepoxiden.

19. Verwendung nach einem der Ansprüche 16 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß die plättchenförmigen Partikel ausgewählt sind aus der Gruppe der Schichtsilikate oder der plättchenförmigen Metallpigmente.

20. Verwendung nach einem der Ansprüche 16 bis 19, wobei man als weitere Beschichtung einen Lack aufbringt, der neben einem Fotoinitiator als weitere Komponenten mindestens ein Umsetzungsprodukt aus feinpulvrigem Silikat, organofunktionelles Silan und Wasser enthält.

21. Verpackungsmaterial aus Kunststoff, Papier, Pappe oder Karton, das mit einer Barrierschicht aus einer gehärteten Zusammensetzung nach Anspruch 1 bis 10 beschichtet ist.

22. Verpackungsmaterial nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, daß es mit einer weiteren gehärteten Deckschicht beschichtet ist, die auf der Barrierschicht angeordnet ist und durch Aufbringung und Härtung eines Überzugsmittels hergestellt worden ist, das ein durch UV-Strahlen oder Elektronenstrahlen härtbare Bindemittel und anorganische plättchenförmige Partikel enthält.

23. Verpackungsmaterial nach Anspruch 21 oder 22, dadurch gekennzeichnet, daß es flächig in Form von Folien, Bögen oder Bahnen vorliegt.

24. Verpackungsmaterial nach Anspruch 21 oder 22, dadurch gekennzeichnet, daß es in Form von dreidimensionalen Hohlkörpern vorliegt.

Zusammenfassung

5

Zusammensetzung zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase

- 10 Zusammensetzung auf Organosilanbasis zur Erzeugung einer Barrierschicht für Gase, die gekennzeichnet ist durch einen Gehalt an
- (i) mindestens einem Organoalkoxysilan, dessen Organofunktionalität mindestens eine ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppe ausweist,
 - (ii) mindestens einem Aminoalkylalkoxysilan,
 - (iii) mindestens einem Polyol,
 - (iv) gegebenenfalls einem weiteren Alkoxysilan oder Alkoxysiloxan und
 - (v) gegebenenfalls mindestens einem nano- oder mikroskaligen Halbmetall- oder Metalloxid, -oxidhydroxid oder -hydroxid und/oder
 - (vi) mindestens einem Cokondensat aus den Komponenten (i), (ii), (iii) und gegebenenfalls (iv) sowie gegebenenfalls (v) und/oder
 - 20 (vii) unter Hydrolysebedingungen entstehenden Reaktionsprodukten aus den Komponenten (i), (ii), (iii) und gegebenenfalls (iv) sowie gegebenenfalls (v)
 - (viii) und organischem Lösemittel mit der Maßgabe, daß ein molares Verhältnis (i) : (ii) : (iii) mit (i) = 1 und (ii) = 0,5 bis 1,5 und (iii) = 0,3 bis 1,1 vorliegt.

Die Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung und die Verwendung der Zusammensetzung sowie unter Verwendung der Zusammensetzung hergestellte Verpackungsmaterialien.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☒ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.